

# 論文審査の結果の要旨

氏名 江 宏仁

温度勾配により物質が輸送される現象は熱泳動(thermophoresis)現象と呼ばれ、19世紀の中ごろに発見されて以降、多くの系でその発現が確認されている。一般に、物質の流量は線形非平衡熱力学的考察に基づく現象論的な関係式によって記述されると考えられている。また、熱泳動現象は、従来定常状態における物質濃度の分布の観点から研究されているがその機序は十分に理解されていない。

論文提出者は、この熱泳動現象を単一コロイド分子および単一高分子のレベルで研究すべく、水溶液中で局所温度勾配を作る手法を開発し、様々な物質への適用を通じてメカニズムの解明を目指した研究を行っている。

本論文は全5章からなる。第1章は序論であり、研究の背景、熱泳動の理論的取り扱いの現状、ポリマーの熱泳動について概観した後、本論文の構成をまとめている。

第2章では、局所温度勾配を制御する手法を新たに開発し、単一ビードや蛍光標識された単一DNAの熱泳動現象を測定している。単一ビードの測定結果は、開発した手法が従来の定常状態法よりも熱泳動現象を研究するための有益な手法であることを示している。実際、熱泳動現象を定常状態に達することなく大きな温度勾配の下で測定でき、粒子が温度勾配下でどのように動くかについてより多くの情報が得られる。

一方、単一DNAの測定結果は、DNAの熱泳動現象を単一高分子の形態から初めて直接的に観測したものであり、結合した個々のセグメントの熱泳動として取り扱うべきものであることを明らかにした。また、DNAを楕円形と見立てたとき、その楕円率が異なるDNAは温度勾配中で異なる速さで移動することも見出した。このことは、DNAの形態がその非線形応答に影響を及ぼす新たなパラメータなることを示している。

第3章では温度勾配によって誘起された力を測定するための新しい手法を提案し、単一ビードと単一DNAに働く熱的な力(thermal force)を測定している。測定の結果、温度勾配の増大とともに熱的な力も増大することを見出した。特に、光ピンセットで測定された力を熱泳動中の引張り力と比較することにより、熱泳動現象を熱的な力と関係づけている。実際、熱泳動を伴わない状況で熱的な力が測定されていることは、粒子が移動しない時でさえ、温度勾配に起因する力が確かに存在することを示している。

論文提出者はさらに、温度勾配の制御を単一分子操作の有効な手段として用いることができることを示している。光ピンセットや磁気ピンセットは、それぞれ電場や磁場の強度勾配を利用しているのに対し、剪断流を用いたDNA分子の引き伸ばしは、温度勾配によって誘起された流体の急速な速度勾配を利用している。一連の結果は、温度勾配を微小粒子や単一分子に局所的な力を及ぼすために利用できることを示している。

第4章は本研究の中核と位置づけられるものであり、レーザー光と液晶空間光変

調器を組み合わせることで溶液の温度分布を制御することにより、コロイド粒子を操作する新しい手法を提示するとともに、この手法を用いることにより、透明な物質にしか適用できないなどの従来のレーザーピンセットの制約を克服できることを示している。

第一光熱捕捉(primary optothermal manipulation)と呼ぶ手法では、捕捉の仕方は操作する物質の性質に依存している。この手法は有益であるが、物質自身の性質を予め十分に調べたり、光学的なセットアップを検討する必要がある。すなわち、個々の単一粒子の性質を十分理解することが洗練された応用を開発する上で重要な課題となる。

一方、第二光熱捕捉(secondary optothermal manipulation)と呼ぶ手法は、少量のポリマーを溶液に加えることによりサブミクロンサイズのビードや固定されていないDNA分子や生物の細胞などを捕捉できる新しい手法であることを示している。この手法を用いて広範なコロイド状物質を捕捉できるので、いろいろな科学分野における様々な応用が期待できる。論文提出者は、この第二光熱捕捉のメカニズムを説明する試みの中でエントロピー効果の寄与の可能性を指摘している。

第二光熱捕捉の手法は、ポリマーの局所的な濃度を変えることにより、浸透圧を制御する手法にもなりうる。光を用いて浸透圧を局所的に制御する技術もまたさまざまな応用に利用できるであろう。

第5章で本研究のまとめを述べると共に、今後の課題を展望している。特に、本研究で開発した技術を分子の分類をしたり、コロイド粒子を集めたりするためのマイクロな流体デバイスに統合できる可能性を指摘している。

本研究で得られた一連の成果は、非平衡ソフトマター物理学の新しい知見として高く評価できる。

なお、本論文の主要部分は指導教員との共同研究であるが、実験の遂行とデータの解析のいずれにおいても論文提出者が主体となって行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断できる。

したがって、審査委員全員一致で博士(理学)の学位を授与できると認める。